# 日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2004年 7月 6日

出 願 番 号 Application Number:

特願2004-199640

パリ条約による外国への出願 に用いる優先権の主張の基礎 となる出願の国コードと出願 番号

JP2004-199640

The country code and number of your priority application, to be used for filing abroad under the Paris Convention, is

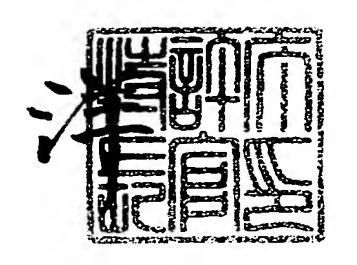
出 願 人

Applicant(s):

積水化学工業株式会社

2005年 8月24日

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 1) 11



【百烘白】 【整理番号】 04P00799 【提出日】 平成16年 7月 6日 【あて先】 特許庁長官殿 【国際特許分類】 C03C 27/12 【発明者】 【住所又は居所】 滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 【氏名】 深谷 重一 【発明者】 【住所又は居所】 滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学工業株式会社内 【氏名】 八田 文吾 【特許出願人】 【識別番号】 000002174 【氏名又は名称】 積水化学工業株式会社 【代表者】 大久保 尚武 【手数料の表示】 【予納台帳番号】 005083 【納付金額】 16,000円 【提出物件の目録】 【物件名】 特許請求の範囲 【物件名】 明細書 【物件名】 図面 1 【物件名】 要約書 1

【盲从句】竹訂硝小少聪团

#### 【請求項】】

ポリビニルアセタール樹脂と耐湿性向上剤とを含有することを特徴とする合わせガラス用中間膜。

#### 【請求項2】

耐湿性向上剤は、両親媒性物質及び/又は界面活性剤であることを特徴とする請求項1記載の合わせガラス用中間膜。

#### 【請求項3】

耐湿性向上剤は、SP値溶解度パラメーターが $15.0\sim35.0MPa^{1/2}$ であることを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。

# 【請求項4】

耐湿性向上剤は、常温常圧における比誘電率が15~50であることを特徴とする請求項1又は2記載の合わせガラス用中間膜。

# 【請求項5】

耐湿性向上剤は、リン酸エステル系化合物であることを特徴とする請求項1、2、3又は4記載の合わせガラス用中間膜。

#### 【請求項6】

キレート剤及び/又は少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物を含有すること を特徴とする請求項1、2、3、4又は5記載の合わせガラス用中間膜。

# 【請求項7】

キレート剤は、アセチルアセトンであることを特徴とする請求項 6 記載の合わせガラス用中間膜。

#### 【請求項8】

少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物は、2エチルヘキサン酸であることを 特徴とする請求項6記載の合わせガラス用中間膜。

# 【請求項9】

請求項1、2、3、4、5、6、7又は8記載の合わせガラス用中間膜を用いてなることを特徴とする合わせガラス。

【盲烘白】叨叫盲

【発明の名称】合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

# 【技術分野】

[0001]

本発明は、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及 び合わせガラスに関する。

#### 【背景技術】

[0002]

従来より、合わせガラスは、外部衝撃を受けて破損しても、ガラスの破片が飛散することが少なく安全であるため、自動車等の車両、航空機、建築物等の窓ガラス等として広く使用されている。このような合わせガラスとしては、少なくとも一対のガラス間に、例えば、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂等のポリビニルアセタール樹脂からなる合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させたもの等が挙げられる。

[0003]

このような合わせガラス用中間膜の問題点のひとつとして、吸湿によるヘイズ値の上昇が 挙げられる。このような合わせガラス用中間膜の吸湿は、とりわけ車両用サイドガラス等 の合わせガラスの側面が露出しているような場合において、周辺白化及び発泡現象として 顕著に認められる。

 $[0\ 0\ 0\ 4\ ]$ 

このような合わせガラス用中間膜の吸湿を防ぐ方法として、特許文献1には、合わせガラス用中間膜中に含まれるナトリウムイオン及びカリウムイオンの濃度を一定以下に調整した合わせガラス用中間膜が開示されている。これは吸湿の原因となるナトリウムイオン及びカリウムイオンを合というものである。しかしながら、ナトリウムイオン及びカリウムイオンを一定の濃度以下にしようとすると、選択可能な添加剤の種類や量に著しい制限があることに加え、有機酸マグネシウム塩等を接着力調整剤として配合する必要があるという問題点もあった。そこで、より簡便でかつ低コストな耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜が求められていた。

[0005]

【特許文献1】特許第2999177号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0006]

本発明は、上記現状に鑑み、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

[0007]

本発明は、ポリビニルアセタール樹脂と耐湿性向上剤とを含有する合わせガラス用中間膜 。である。

以下に本発明を詳述する。

[0008]

合わせガラス用中間膜中において、水分は2つの形態を取り得る。即ち、1つは吸着水と呼ばれる、合わせガラス用中間膜に含まれる樹脂成分や添加剤等の官能基に吸着された形で含まれる水分であり、もう1つは、これらに吸着されていない、バルク水と呼ばれる水分である。合わせガラス用中間膜が吸湿してバルク水の含有量が増えると、バルク水同士が凝集してその粒子径が大きくなり、可視光の散乱を起こし、ヘイズの上昇という形で現れてくることがある。また、バルク水粒子を核として発泡等が起こることもある。

本発明者らは、鋭意検討の結果、特定の化合物を配合することにより極めて耐湿性に優れ、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない遮熱合わせガラス用中間膜が得られることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0009]

平北明27日47ビルノへ用中国族は、ホッピールノモノール側加に剛進は円上則にで占有り る。

上記ポリビニルアセタール樹脂は、合わせガラス用中間膜としての基本的な役割を果たす ものである。

上記ポリビニルアセタール樹脂としては特に限定されず、従来より合わせガラス用中間膜 用樹脂として用いられているものを使用することができ、例えば、アセタール化度60~ 75モル%、重合度800~3000のもの等が好適に用いられる。重合度が800未満 であると、樹脂膜の強度が弱くなりすぎて得られる合わせガラスの耐貫通性が低下するこ とがあり、重合度が3000を超えると、樹脂膜の成形性が難しくなったり、樹脂膜の強 度が強くなりすぎて得られる合わせガラスの衝撃吸収性が低下したりすることがある。な かでも、ガラスに対する適正な接着力、透明性、耐候性に優れるという点からポリビニル ブチラール樹脂が好適である。

#### [0010]

上記ポリビニルアセタール樹脂は、ポリビニルアルコールをアルデヒドによりアセタール 化することにより得ることができる。上記ポリビニルアルコールは、通常ポリ酢酸ビニル を鹼化することにより得られ、鹼化度80~99.8モル%のポリビニルアルコールが一 般的に用いられる。

上記ポリビニルアルコール樹脂の粘度平均重合度は200~300であることが好まし い。200未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が低下することがあり、30 00を超えると、樹脂膜の成形性が悪くなり、樹脂膜の剛性が大きくなり過ぎ、加工性が 悪くなることがある。より好ましくは500~2000である。なお、ポリビニルアルコ ール樹脂の粘度平均重合度及び鹼化度は、例えば、JIS

K 6726「ポリビニルアルコール試験方法」に基づいて測定することができる。

#### $[0\ 0\ 1\ 1]$

上記アルデヒドとしては特に限定されず、一般に、炭素数が1~10のアルデヒドが用い られ、例えば、nーブチルアルデヒド、イソブチルアルデヒド、nーバレルアルデヒド、 2-エチルブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒド、n-オクチルアルデヒド、n-ノニルアルデヒド、nーデシルアルデヒド、ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、ベン ズアルデヒド等が挙げられる。なかでも、n-ブチルアルデヒド、n-ヘキシルアルデヒ ド、nーバレルアルデヒドが好適に用いられる。特に好ましくは炭素数が4のブチルアル デヒドである。

#### [0012]

本明細書において耐湿性向上剤とは、配合することにより合わせガラス用中間膜の耐湿性 を向上させる剤を意味する。

上記耐湿性向上剤としては特に限定されないが、両親媒性物質及び/又は界面活性剤が好 適である。

上記両親媒性物質とは、例えば、カルボキシル基、スルホニウム基、アルデヒド基、ケトロ 基、アンモニウム基、ヒドロキシ基等の親水基と、炭化水素基等の疎水基とを両方有する一 化合物を意味する。具体的には例えば、エタノール、プロパノール等の一価アルコール; エチレングリコール等の二価アルコール等をはじめとする多価アルコール;シクロヘキサ❤️ ノール等の脂環式アルコール;ベンジルアルコール等の芳香族アルコール;ヒドロキシア ルデヒド、ヒドロキシケトン、ヒドロキシ酸、ステロール、テルペン類等のアルコール誘 導体;酢酸、ステアリン酸等のモノカルポン酸;シュウ酸等のジカルポン酸をはじめとす る多官能カルボン酸;安息香酸等の芳香族カルボン酸;アクリル酸等の不飽和カルボン酸 ;アシル化合物、酸アミド、酸アジド、酸塩化物、酸無水物、ニトリル等のカルボン酸誘 導体;ヒドロキシ酸、ケト酸、アルデヒド酸、フェノール酸、アミノ酸、ハロゲンカルボ● ン酸等カルボキシル基以外の官能基を有するカルボン酸等が挙げられる。

#### [0013]

上記界面活性剤としては特に限定されず、一般に、分散剤、乳化剤、消泡剤、潤滑剤、浸 透剤、洗浄剤、ピルダー、疎水化剤、撥水剤、表面調整剤、粘度調整剤として用いられる

ルロ物寸が手りつれ、例えは、升イタン性、物イタン性、凹性、怯イタン性のものを用いることができる。

[0014]

非イオン性の界面活性剤としては、例えば、ボリオキシエチレンラウリルエーテル等のボリオキシアルキレンアルキルエーテル;ボリオキシエチレンアルキルエーテル、ボリオキシエチレンボリオキシブロピレングリコール等のボリオキシアルキレンアルキルエーテルやボリオキシエチレンが 導体;ソルピタンモノラウレート等のソルビタン脂肪酸エステル;ボリエキシエチレンソルビタンモノラウレート等のポリオキシアルキレンソルビタン脂肪酸エステル;テトラオレイン酸ボリオキシエチレンソルビット等のボリオキシアルキレンソルビトール脂肪酸エステル;ボリエチレンクリコールモノステアレート等のグリセリン脂肪酸エステル;ボリエチレングリコールモノラウレート等のポリオキシアルキレン脂肪酸エステル;ボリオキシエチレンでリコールモノラウレート等のポリオキシアルキレン脂肪酸エステル;ポリオキシエチレンでルキルアミン、アルキルアルカノールアミド等が挙げられる。

[0015]

陽イオン性の界面活性剤としては、例えば、ココナットアミンアセテート等のアルキルアミン塩、ラウリルトリメチルアンモニウムクロライド等の第四級アンモニウム塩等が挙げられる.

 $[0\ 0\ 1\ 6]$ 

両性の界面活性剤としては、例えば、ラウリルベタイン等のアルキルベタイン、ラウリル ジメチルアミンオキサイド等のアルキルアミンオキサイド等が挙げられる.

 $[0\ 0\ 1\ 7]$ 

陰イオン性の界面活性剤としては、例えば、ラウリル硫酸ナトリウム等のアルキル硫酸エ ステル塩、ポリオキシエチレンラウリルエーテル硫酸ナトリウム等のポリオキシアルキレ ンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ドデシルベンゼンスルフォン酸等のアルキルベンゼ ンスルフォン酸塩、脂肪酸石けん、ポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸カリウム やアルケニルコハク酸ジカリウム等のカリウム塩、アルカンスルホン酸ナトリウム等のナ トリウム塩;ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシ エチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエチレンラウリルフェニル エーテルリン酸エステル等のポリオキシアルキレンアルキルフェニルエーテルリン酸エス テル;トリメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、トリブチルホスフェート、ト リス(2-クロロエチル)ホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホス フェート、クレジル・ジフェニルホスフェート、ジー2ーエチルヘキシルホスフェート、 メチルアシッドホスフェート、メチルアシッドホスフェート、エチルアシッドホスフェー ト、プロピルアシッドホスフェート、イソプロピルアシッドホスフェート、ブチルアシッ ドホスフェート、ラウリルアシッドホスフェート、ステアリルアシッドホスフェート、2 ーエチルヘキシルアシッドホスフェート、イソデシルアシッドホスフェート、フェニルホ スホン酸、ポリオキシエチレンオクチルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエ チレンノニルフェニルエーテルリン酸エステル、ポリオキシエチレンラウリルフェニルエ ーテルリン酸エステル等のリン酸エステル等が挙げられる。

[0018]

上記耐湿性向上剤としては、なかでも、SP値(溶解度パラメーター)がポリビニルアセタール樹脂及び後述する可塑剤よりも大きく、水よりも小さいものが好ましい。なかでもSP値(溶解度パラメーター)が15.0~35.0MPa<sup>1</sup>/2であるであるものが好適である。

ここでSP値とは、対象となる物質の分散性、極性及び双極子モーメントを総合して評価する値であり、下記式(1)により求めることができる。

[0019]

SP値 =  $\int (\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2)$ 

α:分散力

β:極性

γ:双極子モーメント

SP値が15.0 MP  $a^{1/2}$  未満であると、水分への吸着力が低すぎるために、ヘイズ値上昇の原因となる凝集バルク水の発生を抑えることができず、35.0 MP  $a^{1/2}$  を超えると、ポリピニルアセタール樹脂や可塑剤との親和性の低さから相分離を起こしてしまうことがある。より好ましい下限は10 MP  $a^{1/2}$  、より好ましい上限は30 MP  $a^{1/2}$  である。

# [0020]

また、SP値の測定が困難な場合には比誘電率により判断を行ってもよい。即ち、上記耐湿性向上剤としては、常温常圧における比誘電率が15~50であるものが好適である。15未満であると、ヘイズ値上昇の原因となる凝集バルク水の発生を抑えることができず、50超えると、ポリビニルアセタール樹脂や可塑剤との親和性の低さから相分離を起こしてしまうことがある。より好ましい下限は10、より好ましい上限は30である。

#### [0021]

このようなSP値又は比誘電率を有する耐湿性向上剤としては、例えば、リン酸エステル系化合物、エタノールやプロパノールのような低級アルコール等が挙げられる。なかでも、リン酸エステル系化合物が特に好適である。

# [0022]

上記耐湿性向上剤の含有量としては、ポリピニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限が0.005重量部、好ましい上限が10重量部である。0.01重量部未満であると、充分な耐湿性の向上効果が得られないことがあり、10重量部を超えると、中間膜の製膜時に発泡したり、合わせガラスにした際に、発泡を生じたり、中間膜とガラスとの接着力が上がりすぎることがある。より好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は5重量部である。

# [0023]

本発明の合わせガラス用中間膜は、キレート剤及び/又は少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物を含有することが好ましい。キレート剤及び/又は少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物を併用することにより、本発明の合わせガラス用中間膜の耐湿性を更に向上させることができる。

#### [0024]

上記キレート剤としては特に限定されず、例えば、ΕDTA類及びβージケトン類等が挙げられる。なかでも、βージケトン類は、可塑剤や樹脂との相溶性のよいことから好ましく、特にアセチルアセトンが好適である。アセチルアセトン以外にもベンゾイルトリフルオロアセトンやジピバロイルメタン等を用いてもよい。

#### [0025]

上記キレート剤の含有量としては、ポリビニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限が0.005重量部、好ましい上限が10重量部である。0.005重量部未満であると、充分な耐湿性の向上効果が得られないことがあり、10重量部を超えると、中間膜の製膜時に発泡したり、合わせガラスにした際に発泡を生じたりすることがある。より好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は5重量部である。

#### [0026]

上記1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物としては特に限定されず、例えば、脂肪族カルボン酸、脂肪族ジカルボン酸、芳香族カルボン酸、芳香族ジカルボン酸、ヒドロキシ酸

マルチリウル、より具体的には、女心自眩、ノノル眩、リリアル眩、リンノール眩すか手げられる。なかでも、炭素数 2~18の脂肪族カルボン酸が好ましく、より好ましくは炭素数 2~10の脂肪族カルボン酸である。具体的には、例えば、酢酸、プロピオン酸、 n 一酪酸、 2エチル酪酸、 n ーヘキサン酸、 2エチルヘキサン酸、 n ーオクタン酸等が挙げられる。なかでも、 2エチルヘキサン酸が特に好適である。

#### [0027]

上記1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物の含有量としては、ボリビニルアセタール樹脂100重量部に対して好ましい下限が0.005重量部、好ましい上限が10重量部である。0.005重量部未満であると、充分な耐湿性の向上効果が得られないことがあり、10重量部を超えると、得られる中間膜が黄変したり、ガラスと中間膜との接着性を損なったりすることがある。より好ましい下限は0.01重量部、より好ましい上限は5重量部である。

#### [0028]

本発明の合わせガラス用中間膜は、更に、可塑剤を含有してもよい。

上記可塑剤としては通常ポリビニルアセタール樹脂に使用されるものであれば特に限定されず、中間膜用の可塑剤として一般的に用いられている公知の可塑剤を用いることができ、例えば、一塩基性有機酸エステル、多塩基性有機酸エステル等の有機系可塑剤;有機リン酸系、有機亜リン酸系等のリン酸系可塑剤等が挙げられる。これらの可塑剤は、単独で用いられてもよく、2種以上が併用されてもよく、樹脂との相溶性等を考慮して、ポリビニルアセタール樹脂の種類に応じて使い分けられる。

# [0029]

上記一塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリエチレングリコール、テトラエチレングリコール又はトリプロピレングリコール等のグリコールと、酪酸、イソ酪酸、カプロン酸、2ーエチル酪酸、ヘプチル酸、nーオクチル酸、2ーエチルへキシル酸、ペラルゴン酸(nーノニル酸)又はデシル酸等の一塩基性有機酸との反応によって得られるグリコール系エステルが挙げられる。なかでも、トリエチレングリコールージカプロン酸エステル、トリエチレングリコールージー2ーエチル酪酸エステル、トリエチレングリコールージー2ーエチルへキシル酸エステル等のトリエチレングリコールの一塩基性有機酸エステルが好適に用いられる。

# [0030]

上記多塩基性有機酸エステル系可塑剤としては特に限定されず、例えば、アジピン酸、セバシン酸又はアゼライン酸等の多塩基性有機酸と、炭素数4~8の直鎖状又は分枝状アルコールとのエステル等が挙げられる。なかでも、ジブチルセバシン酸エステル、ジオクチルアゼライン酸エステル、ジブチルカルピトールアジピン酸エステル等が好適に用いられる。

上記有機リン酸系可塑剤としては特に限定されず、例えば、トリプトキシエチルホスフェート、イソデシルフェニルホスフェート、トリイソプロピルホスフェート等が挙げられる

#### [0031]

上記可塑剤としては、なかでも、トリエチレングリコールージーエチルプチラート、トリエチレングリコールージーエチルヘキソエート、トリエチレングリコールージーブチルセパケート等が好適に用いられる。

#### [0032]

上記可塑剤の配合量は、ポリピニルアセタール樹脂100重量部に対して20~60重量部であることが好ましい。20重量部未満であると、得られる中間膜や合わせガラスの衝撃吸収性が不充分となることがあり、60重量部を超えると、可塑剤がブリードアウトして得られる中間膜や合わせガラスの光学歪みが大きくなったり、透明性やガラスと中間膜との接着性等が損なわれたりすることがある。より好ましくは30~50重量部である。

# [0033]

平元切のロルビルノへ用中間候は、ベロン酸エヘノルボルロ物、ンゴン酸ノーソトボルロ物、ベンゾトリアゾール系化合物、ベンゾフェノン系化合物、トリアジン系化合物、ベンゾエート系化合物、ヒンダードアミン系化合物等の紫外線吸収剤;有機酸又は無機酸のアルカリ金属塩又はアルカリ土類金属塩、変成シリコーンオイル等の接着力調整剤;酸化防止剤、光安定剤、界面活性剤、難燃剤、帯電防止剤、耐湿剤、熱線反射剤、熱線吸収剤等の従来公知の添加剤を含有してもよい。

[0034]

本発明の合わせガラス用中間膜を製造する方法としては特に限定されないが、例えば、上記ポリビニルアセタール樹脂、耐湿性向上剤、キレート剤、少なくとも1つ以上のカルボキシル基をもつ化合物、及び、必要に応じて添加する各種の添加剤を、押出機、プラストグラフ、ニーダー、バンバリーミキサー、カレンダーロール等を用いて混練し、これを押し出し法、カレンダー法、プレス法等の通常の製膜法によりシート状に製膜する方法等が挙げられる。

[0035]

本発明の合わせガラス用中間膜は、上記構成からなることにより、極めて耐湿性に優れ、 吸湿によりヘイズ値が上昇したりすることがない。

本発明の合わせガラス用中間膜を用いてなる合わせガラスもまた、本発明の1つである。

[0036]

本発明の合わせガラスに使用するガラスとしては特に限定されず一般に使用されている透明板ガラスを使用することができ、例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、着色された板ガラス、熱線吸収ガラス等の各種無機ガラス:ボリカーボネート板:ボリメチルメタクリレート板等の有機ガラス等が挙げられる。これらのガラスは、単独で用いられてもよいし、2種類以上が併用されてもよい。また、ガラスの代わりにボリカーボネート、ボリメチルメタクリレ」ト等の透明性のプラスチックを用いてもよい。

上記ガラス等の厚みとしては、用途によって適宜選択されればよく、特に限定されるものではない。

本発明の合わせガラスは、本発明の合わせガラス用中間膜を使用して、従来公知の方法により製造することができる。

 $[0\ 0\ 3\ 7\ ]$ 

本発明の合わせガラスの用途としては特に限定されず、例えば、自動車のフロントガラス、サイドガラス、リアガラス、ルーフガラス;航空機や電車等の乗り物のガラス部位、建築用ガラス等が挙げられる。なかでも、自動車のサイドガラス等のように、合わせガラスの側面が露出しているような場合に特に好適である。

[0038]

本発明の合わせガラスを、側面が露出しているような用途に用いる場合、該露出した側面に面した部分にのみ本発明の合わせガラス用中間膜が用いられていても充分な効果が得られる。よい。

図1及び図2にこのような態様の合わせガラスを示す模式図を示した。図1及び図2において(a)は、合わせガラスの正面図であり、(b)は、一点破線部分において切断した断面図である。

図1に示した合わせガラスでは、露出した側面に面した部分全体に本発明の合わせガラス 用中間膜が、その他の部分には従来の合わせガラス用中間膜が用いられている。

図2に示した合わせガラスでは、ガラスの全体に用いられた従来の合わせガラス用中間膜の露出した側面に面した部分に切り割り状に本発明の合わせガラス用中間膜が挿入された 構造である。

#### 【発明の効果】

[0039]

本発明によれば、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することができる。 BEST AVAILABLE COPY

1九切で大心りるにのツ取取ツルルに1

[0040]

(実施例1)

(1) ポリビニルブチラールの合成

純水2890重量部に、平均重合度1700、酸化度99.2 モル%のボリビニルアルコール275重量部を加えて加熱溶解した。この反応系を15℃に温度調節し、35重量%の塩酸201重量部とn-ブチルアルデヒド157重量部を加え、この温度を保持して反応物を析出させた。その後、反応系を60℃で3時間保持して反応を完了させ、過剰の水で洗浄して未反応のn-ブチルアルデヒドを洗い流し、塩酸触媒を汎用な中和剤である水酸化ナトリウム水溶液で中和し、更に、過剰の水で2時間水洗及び乾燥を経て、白色粉末状のポリビニルブチラール樹脂を得た。この樹脂の平均ブチラール化度は68.5 モル%であった。

[0041]

(2)合わせガラス用中間膜の製造

得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、耐湿性向上剤としてポリオキシェチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステル(SP値: $25.2MPa^{1/2}$ 、誘電率:38.3)を1.0重量部、及び、可塑剤としてトリエチレングリコールージーエチレンブチレート(3GO)38.0重量部とを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの合わせガラス用中間膜を得た。

[0042]

(3)合わせガラスの製造

得られた合わせガラス用中間膜を、その両端から透明なフロートガラス(縦30cm×横30cm×厚さ2.5mm)で挟み込み、これをゴムバック内に入れ、2.6kPaの真空度で20分間脱気した後、脱気したままオーブンに移し、更に90℃で30分間保持しつつ真空プレスした。このようにして予備圧着された合わせガラスをオートクレーブ中で135℃、圧力1.2MPaの条件で20分間圧着を行い、合わせガラスを得た。

[0043]

(実施例2)

耐湿性向上剤としてポリグリセリン脂肪酸エステル(SP値:27.1MP a 1/2、誘電率:39.5)を用いた以外は実施例1と同様の方法により合わせガラス用中間膜を作製し、得られた合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを得た。

[0044]

(実施例3)

実施例1で得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、耐湿性向上剤としてポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステルSP値:25.2MPa<sup>1</sup>/2、誘電率:38.3)を1.0重量部、アセチルアセトンを1.0重量部、及び、可塑剤としてトリエチレングリコールージーエチレンブチレート(3GO)38.0重量部とを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの合わせガラス用中間膜を得た。得られた合わせガラス用中間膜を用いた以外は実施例1と同様にして合わせガラスを作製

した。 【0045】

(実施例4)

た。

実施例1で得られたポリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、耐湿性向上剤としてポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステル(SP値:25.2MPa<sup>1</sup>/2、誘電率:38.3)を1.0重量部、2エチルヘキサン酸を1.0重量部、及38.0重量部とを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの合わせガラス用中間膜を得

行り4にロわせカノへ用中国族を用いた以外は大心的16回称にしてロれせカノへを主要した。

#### [0046]

(実施例5)

実施例1で得られたボリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、耐湿性向上剤としてボリオキシエチレンノニルフェニルエーテルリン酸エステルSP値: $25.2MPa^{1/2}$ 、誘電率:38.3)を1.0重量部、アセチルアセトンを1.0重量部、<math>2エチルヘキサン酸を1.0重量部、及び、可塑剤としてトリエチレングリコールージーエチレンブチレート(3GO)38.0重量部とを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150Cで30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの合わせガラス用中間膜を得た。

得られた合わせガラス用中間膜を用いた以外は実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。

# [0047]

(比較例1)

実施例1で得られたボリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコールージーエチレンブチレート(3GO)38.0重量部とを添加し、ミキシングロールで充分に溶融混練した後、プレス成形機を用いて150℃で30分間プレス成形し、平均膜厚0.76mmの合わせガラス用中間膜を得た。

得られた合わせガラス用中間膜を用いた以外は実施例1と同様にして合わせガラスを作製した。

# [0048]

(評価)

実施例1~5及び比較例1で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスについて以下の方法により評価を行った。

結果を表1に示した。

#### [0049]

(1) 耐湿試験1

得られた合わせガラス用中間膜を蒸留水中に全体が完全に漬かるように浸漬し、23℃、24時間放置した。放置後、合わせガラス用中間膜のヘイズ値をJIS K6714に準拠した方法により測定した。

# [0050]

(2)耐湿試験2

遮熱合わせガラスを50℃、95%RH環境下、及び、80℃、95%RH環境下にて500hr放置した後、合わせガラスの端部からの白化距離および周辺部の発泡度合いを目視確認し、良好なものに関しては○、不良である場合は×とした。

# $[0\ 0\ 5\ 1]$

# 【表 1】

	耐湿試験前	耐湿試験1	耐湿試験2
	ヘイズ値(%)	ヘイズ値(%)	判定
実施例1	0. 4	32. 5	0
実施例2	0. 4	31. 1	0
実施例3	0. 4	29. 6	0
実施例4	0. 4	29. 9	0
実施例5	0. 3	30. 8	0
比較例1	0. 5	76. 4	×:白化度合いが大きく、 気泡が認められた

【圧米工の利用り形性】

[0052]

本発明によれば、吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスを提供することができる。

【図面の簡単な説明】

[0053]

【図1】本発明の合わせガラスの一実施態様を示す模式図である。

【図2】本発明の合わせガラスの一実施態様を示す模式図である。

【符号の説明】

[0054]

- 1 本発明の合わせガラス用中間膜
- 2 従来の合わせガラス用中間膜
- 3 ガラス

【盲规句】女形盲

【要約】

【課題】 吸湿によるヘイズ値の上昇等のない、耐湿性に優れた合わせガラス用中間剤及び合わせガラスを提供する。

【解決手段】 ポリビニルアセタール樹脂と耐湿性向上剤とを含有する合わせガラス用中間膜。

【選択図】 なし

0000002174

大阪府大阪市北区西天満2丁目4番4号積水化学工業株式会社

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP2005/012510

International filing date: 06 July 2005 (06.07.2005)

Document type:

Certified copy of priority document

Document details:

Country/Office: JP

Number: 2004-199640

Filing date: 06 July 2004 (06.07.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 09 September 2005 (09.09.2005)

Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in Remark:

compliance with Rule 17.1(a) or (b)

